

19 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE  
INSTITUT NATIONAL  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE  
PARIS

11 N° de publication : 2.096.236  
(A n'utiliser que pour  
le classement et les  
commandes de reproduction.)

21 N° d'enregistrement national : 71.21269  
(A utiliser pour les paiements d'annuités,  
les demandes de copies officielles et toutes  
autres correspondances avec l'I.N.P.I.)

# 15 BREVET D'INVENTION

PREMIÈRE ET UNIQUE  
PUBLICATION

22 Date de dépôt..... 11 juin 1971, à 14 h 50 mn.  
Date de la décision de délivrance..... 17 janvier 1972.  
Publication de la délivrance..... B.O.P.I. — «Listes» n. 6 du 11-2-1972.

51 Classification internationale (Int. Cl.) .. B 29 b 1/00.

71 Déposant : Société dite : BADISCHE ANILIN- & SODA-FABRIK AG., résidant en  
République Fédérale d'Allemagne.

73 Titulaire : *Idem* 71

74 Mandataire : Guétet & Bloch, Conseils en brevets d'invention.

54 Procédé de préparation de mélanges de matières plastiques.

72 Invention de :

33 32 31 Priorité conventionnelle : *Demande de brevet déposée en République Fédérale d'Allemagne  
le 11 juin 1970, n. P 20 28 751.8 au nom de la demanderesse.*

La présente invention concerne un procédé de préparation de mélanges de matières plastiques. Dans ce procédé, on soumet une masse fondue de matières plastiques non homogène, pendant un court moment, à de hautes vitesses de cisaillement. On obtient les mélanges de matières plastiques sous forme de poudre.

On connaît déjà plusieurs procédés pour la production de mélanges de matières plastiques. Mais il est cependant particulièrement difficile de préparer des mélanges homogènes de matières thermostiques et de polyisobutylène, par exemple des mélanges de polyéthylène et de polyisobutylène. Ainsi par exemple dans un procédé connu, on soumet à un pré-laminage du polyisobutylène sur un moulin à deux cylindres, à une température de 110 à 120°C d'abord pendant 10 minutes, puis on le mélange avec du polyéthylène. Après environ 10 à 15 minutes, on obtient un mélange homogène.

Dans un autre procédé connu, on plastifie le polyisobutylène dans un mélangeur à caoutchouc préchauffé. On retire ensuite du mélangeur en une ou plusieurs fois, une certaine quantité du contenu que l'on remplace par la même quantité d'un granulat de polyéthylène, obtenant ainsi à la fin un mélange homogène de polyisobutylène et de polyéthylène.

Le brevet allemand 1 288 293 a fait connaître un procédé de préparation de mélanges de polyéthylène et de polyisobutylène en deux étapes, selon lequel on mélange le polyisobutylène prémalaxé avec le polyéthylène dans un mélangeur refroidi, obtenant ainsi un concentrat dont la proportion de polyisobutylène doit être au moins 50 % en poids.

Après broyage, on soumet la matière concentrée dans une deuxième phase ayant également lieu dans un dispositif de malaxage refroidi, à un prémalaxage puis on la dilue par addition de polyéthylène, jusqu'à la teneur voulue en polyisobutylène.

Les procédés connus présentent l'inconvénient que l'on doit prémalaxer le polyisobutylène et préparer un préconcentrat. Dans le cas de l'un des procédés cités, il s'est avéré nécessaire, à cause de la grande chaleur causée par le frottement lors de l'homogénéisation, de refroidir le polyisobutylène ou le mélange de polyéthylène et de polyisobutylène, afin que le polyisobutylène ne soit pas dégradé. Les procédés connus pour la production de mélanges de polyéthylène et de polyisobutylène présentent l'inconvénient qu'ils exigent des périodes d'homogénéisation plus longues, de sorte que les débits horaires réalisables sont faibles.

BAD ORIGINAL

La présente invention vise un procédé simple, par lequel on peut produire, en un temps plus court, des mélanges homogènes de matières plastiques, plus particulièrement de polyéthylène et de polyisobutylène.

- 5 On a trouvé que l'on peut résoudre ce problème si l'on introduit une masse fondue non homogène de matières plastiques dans une zone où la masse fondue est soumise à une vitesse maximale de cisaillement de  $10^4$  à  $10^8$   $\text{sec}^{-1}$  pendant une durée de  $10^{-2}$  à  $10^{-6}$  secondes.
- 10 Le procédé selon l'invention a une importance particulière pour la production de mélanges de matières plastiques que l'on ne pouvait préparer que difficilement par les procédés connus jusqu'ici, par exemple des mélanges constitués :
- a) de matières thermoplastiques, et
  - 15 b) de polyisobutylène, copolymères de l'isobutylène contenant en liaison polymère jusqu'à 10% en poids de 1,3-dioléfines, ainsi que du caoutchouc.
- On utilise ce procédé en premier lieu pour la production de mélanges polyéthylène/polyisobutylène.
- 20 Selon le procédé de l'invention, on peut mélanger de façon homogène les polymères a) et b) pratiquement en toute proportion voulue, et on peut préparer des mélanges de deux ou de plus de deux matières thermoplastiques.
- 25 Par matières thermoplastiques dans le sens de l'invention, on entend, les matières suivantes : polyoléfines, polyamides, polyuréthanes, polyesters et polymérisats, du styrène de l'o-méthylstyrène et de l' $\alpha$ -méthylstyrène. Des polyoléfines qui conviennent sont surtout les homopolymérisats d'oléfines renfermant de 2 à 4 atomes de carbone, par exemple le polyéthylène, le polypropylène et
- 30 le polybutène-1. Le polyéthylène à utiliser possède une densité située entre 0,915 et 0,960  $\text{g/cm}^3$ , le polypropylène une viscosité (mesurée à 130°C dans de la décaline) comprise entre 1,5 et 8  $\text{dl/g}$ . Mais il est cependant aussi possible d'utiliser du polyéthylène chloré renfermant entre 0,5 et 70% en poids de chlore pour la pro-
- 35 duction de mélanges de matières plastiques. Sont convenables aussi des copolymérisats de l'éthylène avec le butène-1 ainsi que des copolymérisats de l'éthylène avec d'autres monomères insaturés éthyléniquement, par exemple des esters vinyliques d'acides monocarboxyliques aliphatiques saturés renfermant entre 2 et 18 atomes de car-
- 40 bone, des éthers vinyliques renfermant entre 3 et 12 atomes de car-

BAD ORIGINAL

- bone ainsi que des esters d'acides carboxyliques non saturés, tels que les esters acrylique et méthacrylique dérivés d'alcools renfermant entre 1 et 8 atomes de carbone, et de polymérisats d'éthylène et d'esters d'acide acrylique qui contiennent en outre de 91 à 5 30 % en poids de groupes libres acide acrylique et/ou des groupes acide méthacrylique. Les comonomères peuvent constituer jusqu'à 50% en poids, par rapport au poids total du polymérisat. L'indice de fusion des polymérisats cités se situe généralement entre 0,1 et 100 g/ 10 min. (mesuré selon ASTM D 1238-57T).
- 10 Parmi les polymérisats envisagés sous la rubrique b), il faut considérer en premier lieu le polyisobutylène ayant, à une température de 20°C, une viscosité de 0,3 à 1,5 . 10<sup>13</sup>, de préférence 10<sup>6</sup> à 10<sup>11</sup> poises. Des copolymérisats d'isobutylène également appro- 15 priés contiennent en liaison polymère jusqu'à 10% en poids d'autres composés insaturés éthyléniquement ou des 1,3-dioléfines. Comme comonomères conviennent, par exemple l'isoprène, le styrène, le chloroprène, le pentadiène-1,3, le butadiène-1,3, le cyclo-pentadiène, le diméthylbutadiène, etc...
- 20 Pour mettre en oeuvre le procédé, on introduit dans un dispositif selon les figures 1 et 3, sous forme d'une masse fondue non homogène, les polymérisats à mélanger de façon homogène les uns avec les autres. La température de la masse fondue non homogène se situe entre le point de fusion du polymérisat (qui a le point de fusion le plus bas des constituants du mélange) et la température 25 maximale admissible sans provoquer aucune modification chimique du polymérisat. Ces températures se situent généralement dans une zone qui s'étend entre 100 et 350°C, de préférence entre 150 et 250°C.
- 30 Le dispositif mélangeur comprend selon la figure 1, essentiellement trois buses disposées concentriquement. L'agent de pulvérisation est amené par la buse à gaz intérieure (1) d'un diamètre de 1 à 30 mm, et par la buse à gaz extérieure (3) d'une largeur de fente annulaire comprise entre 0,3 et 5 mm, de préférence entre 0,9 et 1,3 mm, sous un angle  $\beta = 15$  à 70° par rapport à l'axe de la buse, et la matière plastique préalablement fondue dans une bou- 35 dineuse est amenée par la buse à produit (2) d'une largeur de fente annulaire comprise entre 0,2 et 3 mm sous un angle de cône  $\alpha$  de 5 à 40° par rapport à l'axe de la buse, et ils sont réunis dans la zone de sortie de la buse à trois jets de façon que le courant de gaz intérieur agisse à une distance (x) = 2 à 8 mm en avant de

l'arête avant de l'orifice de sortie de la buse à produit sur la face intérieure du tuyau de produit extrudé, tandis que l'arête avant de l'orifice de la buse à gaz extérieure se trouve en avant d'une distance  $(y) = 1$  à 6 mm par rapport à l'arête avant de l'orifice de la buse de produit. La douille de protection intérieure (4) et la douille de protection extérieure (5) empêchent le produit d'être trop refroidi par les courants de gaz qui sont, pour la plupart, plus froids que lui. Le moyen de chauffage intérieur (6) ainsi que le moyen de chauffage extérieur (7) ont pour but de régler ou de maintenir la température de mélange optimale du produit. Cette température est contrôlée par les sondes (8) montées à l'entrée des buses et les sondes (9) juste en amont de l'orifice de sortie de la buse de produit. Le gaz intérieur de la buse est introduit en (10), le produit en (11), et le gaz extérieur en (12). La section de l'orifice (largeur de fente) de la buse de produit se règle au moyen de la bague d'écartement (13), la largeur de l'orifice de la buse à gaz extérieure au moyen de la bague d'écartement (14). La grandeur  $(x)$  sur la figure représente la distance en retrait de la buse à gaz intérieure, la grandeur  $(y)$  la distance qui sépare l'orifice de la buse à gaz extérieure de la buse à produit. On a également indiqué l'angle de cône  $\alpha$  de l'orifice du courant de produit et l'angle de cône  $\beta$  du courant de gaz extérieur, par rapport à l'axe de la buse. Des bandes de centrage dans la partie centrale des buses ou des tuyaux assurent un montage parfaitement concentrique des sections d'orifice. Ces bandes de centrage sont munies d'une pluralité d'alésages ou de rainures qui permettent l'écoulement, et qui présentent, éventuellement, une inclinaison dans le sens périphérique afin d'obtenir un effet giratoire. Alors que les diamètres des alésages ne jouent aucun rôle, il est nécessaire que la surface totale des alésages ou des rainures d'une bande de centrage soit plus grande que la surface de la fente annulaire d'orifice correspondant, avantageusement dans le rapport de 1, 2 à 4. Si l'on veut donner, en plus, un effet giratoire au gaz intérieur, on introduit un dispositif de giration à l'entrée de la buse à gaz intérieure en (10).

L'angle de conicité  $\alpha$  du courant de produit selon la figure 1 doit être de 5 à 40, de préférence 15 à 25°, par rapport à l'axe de la buse. L'angle de giration prévu pour obtenir une couche uniforme sur la périphérie peut être compris entre 0 et 60, de préférence entre 15 et 45°. Les dimensions du tuyau extrudé sont situées

entre les limites suivantes : diamètre intérieur 1 à 30, de préférence 3 à 15 mm, épaisseur de couche 0,2 à 3, de préférence 0,5 à 1,5 mm.

Comme fluide auxiliaire de pulvérisation on utilise surtout de l'air, des gaz inertes ou de la vapeur d'eau. Le procédé s'avère particulièrement économique si l'on utilise de l'air. Dans le cas où on utilise de la vapeur d'eau, on doit sécher la poudre immédiatement après.

Sur les figures 1 et 2, on a indiqué par le chiffre (15) la zone dans laquelle les polymérisats sont soumis à de très hautes vitesses de cisaillement pendant une courte période. On entend par vitesse de cisaillement le rapport entre la différence de vitesses  $\Delta V$  de deux couches glissant l'une devant l'autre et leur distance  $\Delta h$  perpendiculairement au sens d'écoulement.

$$D = \frac{\Delta V}{\Delta h} \quad [\text{sec}^{-1}] \quad (\text{I}),$$

formule dans laquelle  $\Delta V$  est la différence de vitesse de la masse fondue. La vitesse de la masse fondue est calculée par le quotient du débit  $Q$  par la surface  $F$ , à travers laquelle sort la masse fondue. La vitesse de la masse fondue dans la zone de mélange est comprise entre 1 et 200 m/sec., de préférence entre 10 et 120 m/sec. Si, dans la formule I ci-dessus, on remplace  $V$  par  $Q/F$ , et, selon Hütte, Des Ingenieurs Taschenbuch', Editeur W. Ernst & Sohn, 28ème édition, Berlin, 1955, page 779,  $\Delta h$  par  $\frac{r}{2}$  ( $r$  = rayon hydraulique), on obtient la formule suivante : (III) pour le calcul de la vitesse maximale de cisaillement  $D$ , si l'on introduit encore pour la surface, la formule :

$$F = \pi \cdot d_m \cdot \Delta h \quad (\text{II}),$$

dans laquelle  $d_m$  représente le diamètre moyen de la buse à produit et  $\Delta h$  la largeur de fente annulaire :

$$D = \frac{2 \quad Q}{\pi d_m (\Delta h)^2} \quad [\text{sec}^{-1}] \quad (\text{III}).$$

Si l'on veut obtenir des mélanges homogènes à l'aide du dispositif décrit, il faut déterminer par la formule III des vitesses de cisaillement comprises entre  $10^4$  et  $10^8 \text{ sec}^{-1}$ , de préférence entre  $10^5$  et  $10^7 \text{ sec}^{-1}$ . Le temps de séjour de la masse fondue de matières plastiques dans la zone de cisaillement est donné par le

quotient de la longueur de la zone de mélange (15) par la vitesse de la masse fondue. On calcule, à partir de cette relation, des temps de séjour de la masse fondue de matières plastiques compris entre  $10^{-2}$  et  $10^{-6}$ , de préférence entre  $10^{-4}$  et  $10^{-6}$  secondes.

5 La masse fondue non homogène peut aussi être homogénéisée dans un dispositif selon les figures 3 et 4. La température de la masse doit être comprise entre 100 et 350°C dans le dispositif. On introduit la masse fondue en (20) et on l'extrude sous forme de filaments par de fins alésages (21). La masse ne peut être extrudée selon la figure 4, qu'à travers un alésage fin (21) ou, selon la figure 3, qu'à travers plusieurs alésages fins. De tels dispositifs comportent entre 1 et 150 alésages (21), qui sont disposés en couronnes. Le diamètre de chaque alésage est de 0,5 à 3 mm, de préférence de 0,7 à 1,5 mm. Les filaments extrudés sont soumis en direction sensiblement horizontale à l'action d'un courant de gaz d'une vitesse comprise entre 100 et 750 m/sec., de préférence entre 300 et 450 m/sec. La température du courant de gaz est comprise entre 10 et 350°C. La pression de gaz dans les tubes d'alimentation (22) du dispositif selon les figures 3 et 4 est comprise entre 2 et 120 atmosphères. Le mélange intime conduisant à l'homogénéité des matières plastiques s'effectue dans la zone indiquée par le chiffre (23). La longueur de la zone de mélange est de 0,5 à 5 mm.

La surface, à travers laquelle sort la masse fondue, est déterminée par la formule :  $F = n \pi (\Delta h)^2$ , dans laquelle  $n$  est le nombre d'alésages, et  $\Delta h$  le rayon d'un seul alésage. En tenant compte des hypothèses faites pour calculer la vitesse maximale de cisaillement dans le dispositif selon la figure 1, on arrive à l'expression suivante pour cette vitesse maximale de cisaillement D dans la zone de mélange des dispositifs selon les figures 3 et 4:

$$30 \quad D = \frac{4 \cdot Q}{n \pi \cdot (\Delta h)^3} \quad \left[ \text{sec}^{-1} \right] \quad (IV)$$

A partir de la formule IV, on détermine des vitesses maximales de cisaillement atteintes dans la zone de mélange (23) comprises entre  $10^4$  et  $10^8 \text{ sec}^{-1}$ . Les temps de séjour de la masse fondue de matières plastiques dans la zone de mélange sont compris entre  $10^{-2}$  et  $10^{-6}$  secondes.

35 Sur la figure 5, on a illustré schématiquement le procédé de l'invention. Les matières plastiques à mélanger sont amenées sous forme de granules ou de masse fondue à partir des réservoirs d'alimentation.

15 partie supérieure du réservoir (37) , en insufflant d l'air froid  
en (39). Le mélange de matières plastiques sous forme de poudre  
est amené par un tuyau (40) à un dispositif de séparation (41). On  
recueille la matière plastique sous forme de poudre dans un réservoir  
collecteur (42), le gaz nécessaire à l'opération de mélange  
20 s'échappant par le conduit (43).

Par le procédé de l'invention, on atteint des débits horaires  
élevés du fait des durées de mélange très courtes. Dans des conditions  
optimales, on ne constate pratiquement aucune dégradation  
des matières plastiques.

25 Le procédé présente l'avantage particulier que l'on obtient  
les mélanges sous forme de poudre. Les mélanges de matières plastiques  
pulvérulents ont trouvé, on le sait, un domaine d'applications  
très étendu. Des matières plastiques pulvérulentes sont employées  
par exemple pour le frittage par rotation et pour les procédés de  
30 formage. Les mélanges de matières plastiques pulvérulents  
produits par le procédé de l'invention peuvent être utilisés par  
exemple pour les revêtements de dessous de tapis et de surfaces  
métalliques. On emploie des mélanges de polyéthylène et de polyisobu-  
tylène surtout pour la production de feuilles qui ne présentent  
35 pas de "blocking" c'est-à-dire sans adhérence de contact.

Le procédé selon l'invention est expliqué plus en détails à  
l'aide des exemples suivants .

EXEMPLE 1 :- On introduit un granulé de polyéthylène ayant une  
densité de 0,920 g/cm<sup>3</sup>, un indice de fusion (2,16 kg/190°C) d



1,7 g/ 10 min et un point de fusion des cristallites de 108°C, et un granulé de polyisobutylène ayant un poids moléculaire (selon Staudinger) de 100 000, dans un rapport en poids de 1 : 1, dans une extrudeuse à une vis, où les constituants sont fondus avant  
 5 d'être amenés à un dispositif de mélange selon la figure 1 par un tube chauffé. Le débit est de 200 kg à l'heure. On utilise un dispositif de mélange où la distance en retrait du gaz intérieur (x) et la distance en saillie du gaz extérieur (y) sont chacun de 3,5 mm, l'angle  $\alpha = 17,5^\circ$  et l'angle  $\beta = 37,5^\circ$ . La température du  
 10 gaz intérieur est 250°C, celle du gaz extérieur 80°C. L'épaisseur du courant annulaire de gaz extérieur est 1,2 mm. Le rapport des gaz extérieur - intérieur est 1,2, la pression des gaz 50 atm. effect. On obtient une poudre incolore qui contient 50% en poids de polyisobutylène. La densité de la poudre, (calculée selon DIN  
 15 53 479) est 0,918 g/cm<sup>3</sup>. L'analyse granulométrique donne les résultats suivants :

92 % < 500  $\mu$  ; 60 % < 300  $\mu$  ; 16 % < 100  $\mu$ .

	<u>Caractéristiques du mélange</u>	<u>Spécifications d'essai</u>
	Indice de fusion ( g/10 min)	0,25 MFI 190/2,16 ASTM-D-
20	Densité brute (g/cm <sup>3</sup> )	0,918 DIN 53 479 1238-65 T
	Tension d'étirage (kg/cm <sup>2</sup> )	35 DIN 53 455
	Allongement à la rupture (kg/cm <sup>2</sup> )	500 DIN 53 455
	Module d'élasticité (kg/cm <sup>2</sup> )	505 DIN 53 455
	Module de cisaillement (kg/cm <sup>2</sup> )	4,9.10,8 DIN 53 455
25	Grosseur moyenne des granulés de particules de polyisobutylène	2-5 ( $\mu$ m) microscope électronique

Le mélange obtenu se distingue particulièrement par sa résistance excellente aux substances favorisant la formation de fissures sous tension.

Calcul de la vitesse de la masse fondue dans la zone de mélange :

Vitesse de fusion

$$V = \frac{Q}{F} = \frac{Q}{\pi \cdot d_m \Delta h} = \frac{21,8 \cdot 10^7 \text{ mm}^3}{3600 \text{ s} \cdot 3,14 \cdot 6,5 \text{ mm} \cdot 0,1 \text{ mm}} =$$

$$35 \quad \frac{21,8 \cdot 10^7 \text{ mm}^3}{7,4 \cdot 10^3 \text{ s}} = 2,95 \cdot 10^4 \text{ mm/s}$$

Calcul du temps de séjour dans la zone de mélange :

Longueur de la surface plane de pulvérisation 1 mm

$$\text{Temps de séjour : } \frac{1 \text{ mm}}{2,95 \cdot 10^4 \text{ mm/s}} = \underline{\underline{3,4 \cdot 10^{-5} \text{ s}}}$$

5 Calcul de la vitesse maximale de cisaillement D dans la zone de mélange :

$$D = \frac{2 \cdot Q}{\pi \cdot d_m \cdot (\Delta h)^2} = \frac{4,36 \cdot 10^8 \text{ mm}^3}{3600 \text{ s} \cdot 3,14 \cdot 6,5 \text{ mm} \cdot (0,1 \text{ mm})^2} =$$

$$\frac{4,36 \cdot 10^8 \text{ mm}^3}{0,74 \cdot 10^3 \text{ s}} = \underline{\underline{5,9 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}}}$$

EXEMPLE 2 :- On ajoute du polyéthylène d'une densité de  
 10 0,918 g/cm<sup>3</sup>, un indice de fusion de 0,30 g/10 min (2,16 kg/190°C)  
 et un point de fusion des cristallites de 104,5°C et du polyiso-  
 butylène ayant un poids moléculaire (selon Staudinger) de 130 000,  
 dans un rapport de 9 : 1 dans une machine d'extrusion à une vis,  
 où les constituants sont fondus avant d'être amenés à un disposi-  
 15 tif de mélange selon la figure 1 par un tube chauffé<sup>électriquement</sup>. Le débit ho-  
 raire est de 300 kg de masse fondue. Le tube extrudé a un diamètre  
 intérieur de 6,5 mm, une épaisseur de 1,2 mm. Le retrait du gaz in-  
 térieur (x) et l'avancée du gaz extérieur (y) sont de 4 mm, l'an-  
 20 gle  $\alpha = 17,5^\circ$ , l'angle  $\beta = 37,5^\circ$ . La pression des gaz est de 50  
 atm. effect. la température des gaz 80°C à l'intérieur ainsi qu'à  
 l'extérieur, le rapport gaz extérieur, gaz intérieur est de 1,2.  
 Avec une dépense spécifique de gaz de 4 Nm<sup>3</sup>/kg, on obtient une pou-  
 dre de granulométrie suivante :

90 % < 500  $\mu$  ; 64 % < 300  $\mu$  ; 20 % < 100  $\mu$

25	Caractéristiques du mélange	Spécifications d'essai
	Indice de fusion(g/10 mn )	0,18 MFI 190/2,16 ASTM-D-1238-65 T
	Densité brute (g/cm <sup>3</sup> )	0,916 DIN 53 479
	Résistance à la traction(kg/cm <sup>2</sup> )	100 DIN 53 455
30	Résistance à la rupture(kg/cm <sup>2</sup> )	160 DIN 53 455
	Allongement à la rupture (%)	550 DIN 53 455
	Essai Bell (h)	300 ASTM-D-1693-60 T
	Essai d'impact (g)	250 ASTM-D-1709
35	Grosseur moyenne des granulés de particules de polyisobutylène 2 à 5 ( $\mu$ m)	microscope électronique

Par la formule III, on détermine une vitesse maximale de cisaillement de  $3 \cdot 10^6 \text{ sec}^{-1}$ . Le temps de séjour dans la zone de mélange dépend des quotients de la longueur de la zone de mélange et de la vitesse de la masse fondue. Elle est de  $2 \cdot 10^{-4}$  secondes.

- 5 On obtient une poudre constituée d'un mélange de polyéthylène et de polyisobutylène, contenant 10% en poids de polyisobutylène. A partir de la poudre on produit des feuilles dont l'indice de "blocking" (g/cm<sup>2</sup>) a été trouvé égal à 0, si l'on presse deux  
10 feuilles épaisses de 40  $\mu$  l'une contre l'autre à une température de 70°C et sous une pression de 1 kg/cm<sup>2</sup>, et si on mesure la force nécessaire à séparer les deux feuilles après avoir cessé l'application de la pression.

- EXEMPLE 3 :- On introduit du polyéthylène ayant une densité de 0,918 g/cm<sup>3</sup>, un indice de fusion de 17,8 g/10 min (2,16 kg/190°C) et un point de fusion de cristallites de 104,5°C avec du polyisobutylène ayant un poids moléculaire de 300, une viscosité de 0,30 poise à 20°C et une densité de 0,822 g/cm<sup>3</sup>, en rapport de poids de 99 : 1 dans une extrudeuse à une vis, où les constituants sont fondus, avant d'être amenés au dispositif de mélange décrit à l'exemple 1 ayant une capacité de 200 kg/h par un tube chauffé électriquement. On obtient un mélange de polyéthylène et de polyisobutylène contenant 1% en poids de polyisobutylène.

Caractéristiques du mélange

Spécifications d'essai

25	Indice de fusion (g/10 mn)	20,0	MFI 190/2
			ASTM-D-1238-65 T
30	Densité brute (g/cm <sup>2</sup> )	0,9149	DIN 53 479
	Résistance à la traction (kg/cm <sup>2</sup> )	92	DIN 53 455
	Résistance à la rupture (kg/cm <sup>2</sup> )	100	DIN 53 455
	Allongement à la rupture (%)	210	DIN 53 455
	Indice de "Blocking" (g/cm <sup>2</sup> )	3,6	

Vitesse maximale selon la formule III :  $12 \cdot 10^5$  secondes<sup>-1</sup>

Temps de séjour :  $9 \cdot 10^{-5}$  secondes . /en rapport le poids de 9:1

- 35 EXEMPLE 4 :- Dans une extrudeuse à une vis, on fond à 250°C/ du polypropylène ayant une viscosité limite (calculé à 130°C dans de la décaline) de 3,2 dl/g et une densité de 0,896 g/cm<sup>3</sup>, et du polyisobutylène ayant un poids moléculaire Staudinger de 100 000,

BAD ORIGINAL

un indice de fusion (190/20) de 6,2 et du polyisobutylène ayant un poids moléculaire (selon Staudinger) de 200 000 dans un rapport en poids de 7 : 3 sont introduits dans une extrudeuse à une vis, où on les fond à 275 C, et qui possède une capacité de 125 kg/h, avant de les introduire dans un dispositif de mélange tel que celui décrit dans l'exemple 1. On obtient un mélange de polyéthylène et de polyisobutylène contenant 30% en poids de polyisobutylène.

La poudre présente la granulométrie suivante :

99 % < 500  $\mu$  ; 75 % < 300  $\mu$  ; 25 % < 100  $\mu$

L'indice de fusion du mélange est, selon ASTM-D-1238-65 T, 3,5 g/10 min, la densité, selon DIN 53 479, 0,9372 g/cm<sup>3</sup>. Le mélange est utilisé pour le revêtement de surfaces de dessous de tapis.

EXEMPLE 6 :- Un mélange non homogène constitué de 50 % en poids de polystyrène ayant une densité de 1,05 g/cm<sup>3</sup> et un indice de fusion (200/5) de 9, et 50 % en poids d'un copolymérisat constitué de 90% en poids d'éthylène et 10% en poids d'acétate vinylique ayant une densité de 0,936 g/cm<sup>3</sup> et un indice de fusion (190/2,16) de 4, est introduit dans une extrudeuse à une vis, à une température de 250°C, avant d'être introduit dans le dispositif de mélange représenté à la figure 4. Le débit horaire est de

- 250 kg. On refoule la masse fondue non homogène à travers quarante deux alésages disposés en couronnes, chaque alésage ayant un diamètre de 1 mm. Selon la formule IV, on détermine une vitesse maximale de cisaillement de  $2,1 \cdot 10^6 \text{ sec}^{-1}$ . A partir de la longueur
- 5 de la zone de mélange ( 1 mm) et de la vitesse de la masse fondue de 70 m/sec, on calcule un temps de séjour de  $1,4 \cdot 10^{-5}$  secondes. On obtient un mélange homogène ayant un module d'élasticité, selon DIN 53 457, de  $6000 \text{ kg/cm}^2$ , et que l'on peut utiliser comme poudre de plastification à chaud.
- 10 Granulométrie 97 % < 500  $\mu$  ; 85 % < 300  $\mu$  ; 30 % < 100  $\mu$ .

- EXEMPLE 7 :- Un mélange non homogène constitué de 90% en poids de polyéthylène ayant une densité de  $0,953 \text{ g/cm}^3$  et un indice de fusion (190/20) de 2,0, et 10% en poids de polyisobutylène ayant un poids moléculaire (selon Staudinger) de 100 000, est fondu
- 15 dans une extrudeuse à  $225^\circ\text{C}$ , et introduit dans le dispositif de mélange représenté à la figure 4. On refoule la masse fondue non homogène à travers dix alésages disposés en couronnes, chaque alésage ayant un diamètre de 1 mm. Le débit est de 125 kg/h, la vitesse de cisaillement, selon la formule IV,  $5,3 \cdot 10^6 \text{ sec}^{-1}$ . A partir
- 20 de la longueur de la zone de mélange ( 2 mm) et de la vitesse de la masse fondue de 110 m/sec, on calcule un temps de séjour de  $1,8 \cdot 10^{-5}$  secondes. On obtient un mélange de polyéthylène et de polyisobutylène contenant 10% en poids de polyisobutylène. La poudre a la granulométrie suivante :
- 25 92 % < 500  $\mu$  ; 75 % < 300  $\mu$  ; 24 % < 100  $\mu$  .

#### Caractéristiques du mélange

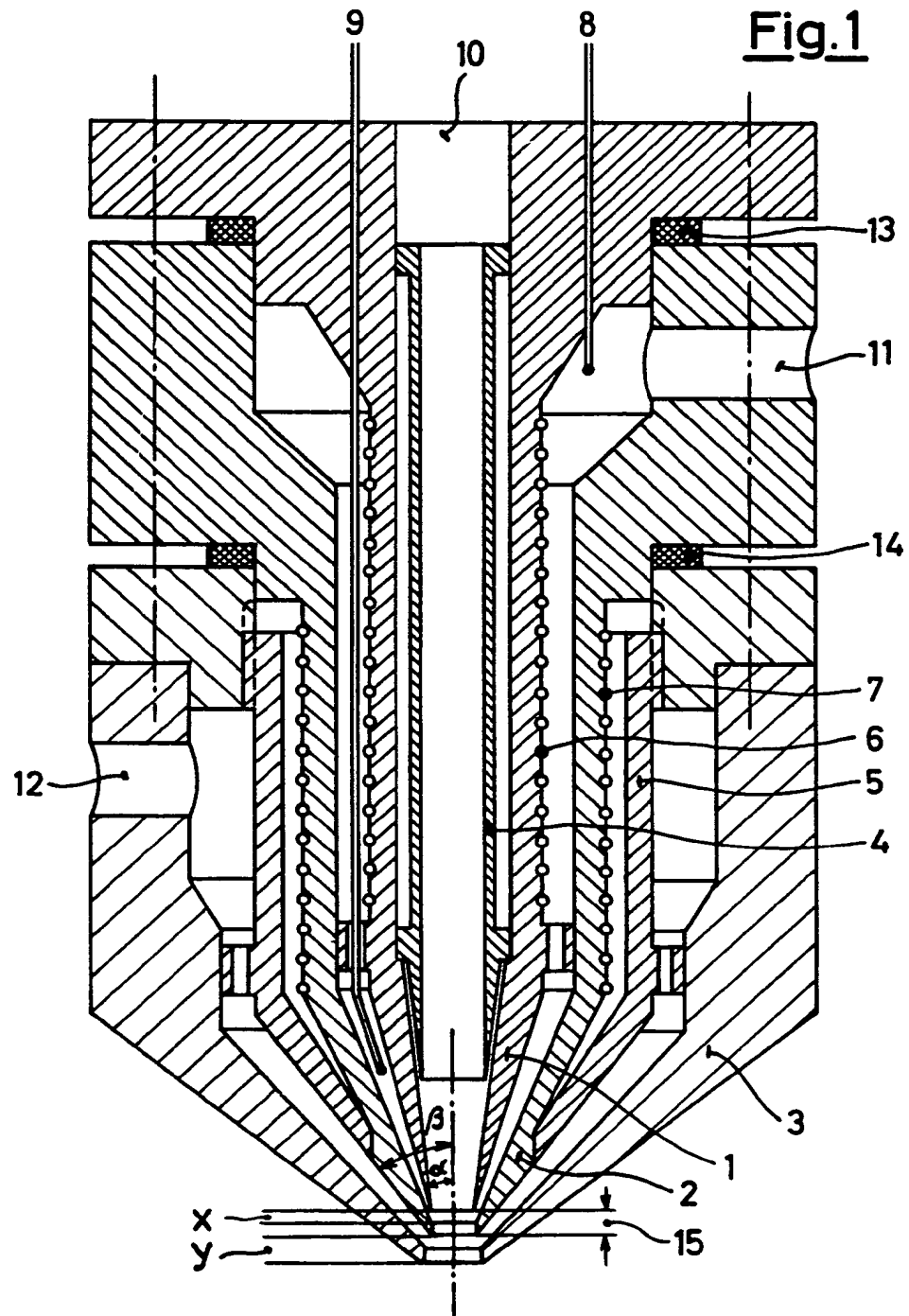
#### Spécifications d'essai

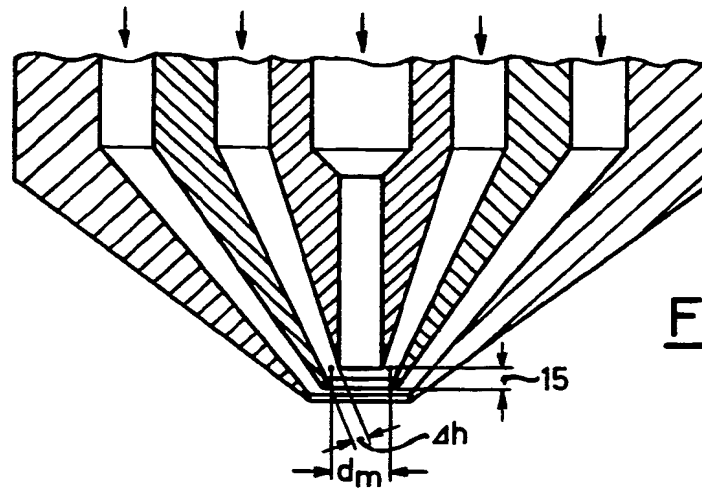
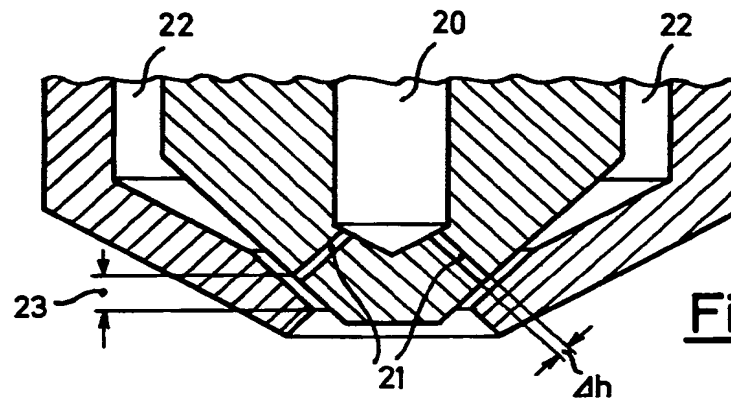
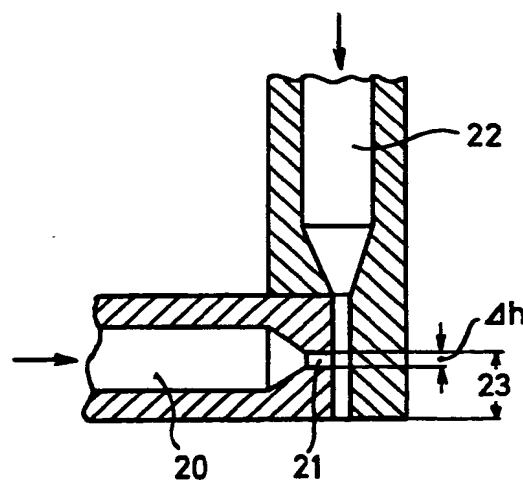
Indice de fusion ( 190/21,6)	0,9	ASTM-D-1238-65 T
Densité ( $\text{g/cm}^3$ )	0,953	DIN 53 479
Module d'élasticité ( $\text{kg/cm}^2$ )	10 000	DIN 53 457
30 Module de cisaillement ( $\text{kg/cm}^2$ )	$5 \cdot 10^9$	DIN 53 455

- REVENTICATION -

Procédé pour la production de mélanges de matières plastiques, caractérisé par le fait que l'on introduit une masse fondue non homogène de matières plastiques dans une zone où ladite masse est soumise pendant  $10^{-2}$  à  $10^{-6}$  secondes, à une vitesse de cisaillement maximale de  $10^4$  à  $10^8$   $\text{sec}^{-1}$ .

5



Fig. 2Fig. 3Fig. 4



**Fig. 5**